

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-128898

(43)Date of publication of application : 08.05.2003

(51)Int.Cl.

C08L 67/02

C08G 63/12

C08G 63/42

(21)Application number : 2001-325085

(71)Applicant : NIPPON SHOKUBAI CO LTD

(22)Date of filing : 23.10.2001

(72)Inventor : IWAI KUNIHIRO

ITO HIROSHI

JIYOUJIMA MICHIIRO

(54) POLYESTER RESIN COMPOSITION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a polyester resin composition, which is prepared from a biodegradable aliphatic polyester and has an adequate weight average molecular weight as well as adequate flowability and subsequently giving excellent mechanical strength and molding property, and also to provide an aliphatic polyester, which can be suitably used for the composition.

SOLUTION: The polyester resin composition contains a resin component having a biodegradable aliphatic polyester as a mandatory component. The composition is characterized by having the specific relationship (1): $-1.3 \times 10^{-5} < \{\log(Y/660)\}/X < 0$ (1), where X is the weight average molecular weight of the above resin component at the viscosity index (MI) measurement and Y (g/10 min) is the above viscosity index.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

28.04.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-128898

(P2003-128898A)

(43) 公開日 平成15年5月8日(2003.5.8)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード*(参考)
C 0 8 L 67/02	Z B P	C 0 8 L 67/02	4 J 0 0 2
C 0 8 G 63/12		C 0 8 G 63/12	4 J 0 2 9
63/42		63/42	

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2001-325085(P2001-325085)

(22) 出願日 平成13年10月23日(2001.10.23)

(71) 出願人 000004628

株式会社日本触媒

大阪府大阪市中央区高麗橋4丁目1番1号

(72) 発明者 岩井 邦浩

大阪府吹田市西御旅町5番8号 株式会社

日本触媒内

(72) 発明者 伊藤 宏

東京都千代田区内幸町1-2-2 株式会

社日本触媒内

(74) 代理人 100073461

弁理士 松本 武彦

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリエステル樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】 生分解性の脂肪族ポリエステルを用いた組成物における、重量平均分子量の確保と流動性の確保の両立を可能とし、その結果、機械的強度に優れるとともに成形性も良好であるという利点を合わせ持つポリエステル樹脂組成物、および、該樹脂組成物に好適に用いることのできる脂肪族ポリエステルを提供する。

【解決手段】 本発明にかかるポリエステル樹脂組成物は、生分解性の脂肪族ポリエステルを必須とする樹脂分を含む樹脂組成物であって、前記樹脂組成物について粘度指数(MI)を測定したときの、前記樹脂分の重量平均分子量をX、前記粘度指数(MI)をY(g/10min)とすると、これらが特定式(1)に示す関係を満たす、ことを特徴とする。

【特許請求の範囲】

【請求項1】生分解性の脂肪族ポリエステルを必須とする樹脂分を含む樹脂組成物であって、前記樹脂組成物について粘度指数(MI)を測定したと

$$-1.3 \times 10^{-5} < \{\log(Y/660)\} / X < 0 \quad (1)$$

ことを特徴とする、ポリエステル樹脂組成物。

【請求項2】前記脂肪族ポリエステルの重量平均分子量が100000以上である、請求項1に記載のポリエステル樹脂組成物。

【請求項3】前記脂肪族ポリエステルが炭素数2以上の脂肪族ジカルボン酸と炭素数2以上の脂肪族グリコールとから得られる樹脂である、請求項1または2に記載のポリエステル樹脂組成物。

【請求項4】前記脂肪族ポリエステルがポリエチレンサクシネートである、請求項3に記載のポリエステル樹脂組成物。

【請求項5】環状酸無水物と環状エーテルとを開環重合して得られる重合体と多価酸無水物とを反応させてなる、脂肪族ポリエステル。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、成形材料用などとして好ましく使用でき、しかも、生分解性をも有するポリエステル樹脂組成物、および、該樹脂組成物に好適に用いることのできる脂肪族ポリエステルに関する。詳しくは、機械的強度に繋がる重量平均分子量を備えながら高い流動性を持ち、しかも、使用後の廃棄処分を考慮した生分解性をも兼ね備えた、成型加工性に優れた、ポリエステル樹脂組成物、および、該樹脂組成物に好適に用いることのできる脂肪族ポリエステルに関する。

【0002】

【従来の技術】脂肪族ポリエステルは、一般に、生分解性を有するため、これを樹脂分として含むポリエステル樹脂組成物は、その特徴を生かし、繊維、シート、フィルム、その他の成形品に加工することで、成形品使用後の廃棄処分における環境負荷の軽減に寄与することが期待されている。しかし、従来のポリエステル樹脂組成物は、工業上の生産性と言う観点から見ると、問題があった。すなわち、機械的強度を高めるために樹脂分の重量平均分子量を高くすると、熔融粘度が高くなり、流動性が低下して、成形性を低下させると言う問題

$$-1.3 \times 10^{-5} < \{\log(Y/660)\} / X < 0 \quad (1)$$

ことを特徴とする。

【0007】また、本発明にかかる脂肪族ポリエステルは、環状酸無水物と環状エーテルとを開環重合して得られる重合体と多価酸無水物とを反応させてなる、ことを特徴とする。

【0008】

【発明の実施の形態】以下、本発明にかかるポリエステル樹脂組成物および脂肪族ポリエステルの好ましい実施

きの、前記樹脂分の重量平均分子量をX、前記粘度指数(MI)をY(g/10min)とすると、これらが下式(1)を満たす、

である。

【0003】それでは、流動性が高ければ良いかと言うと、そうではなく、機械的強度やその他の製品特性に繋がる樹脂分の重量平均分子量の確保も重要である。このような事情は、成形用途以外に使用されるポリエステル樹脂組成物でも同様である。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】そこで、本発明が解決しようとする課題は、生分解性の脂肪族ポリエステルを用いた組成物における、重量平均分子量の確保と流動性の確保の両立を可能とし、その結果、機械的強度に優れるとともに成形性も良好であるという利点を合わせ持つポリエステル樹脂組成物、および、該樹脂組成物に好適に用いることのできる脂肪族ポリエステルを提供することである。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者は、上記課題を解決するために鋭意検討し、その過程で、樹脂分の重量平均分子量と組成物全体の流動性との適度のバランスが重要であり、この適度のバランスを確実に得るための指標を見出すことが必要であると確信して、思考錯誤と実験を重ねた。そして見出したのが、以下に述べる式である。本発明は、このようにして完成された。また、本発明者は、環状酸無水物と環状エーテルとの開環重合により得られる重合体を、鎖延長剤である多価酸無水物と反応させることにより得られる脂肪族ポリエステルであれば、上記課題を一挙に解決できることを見出し、本発明を完成した。

【0006】すなわち、本発明にかかるポリエステル樹脂組成物は、生分解性の脂肪族ポリエステルを必須とする樹脂分を含む樹脂組成物であって、前記樹脂組成物について粘度指数(MI)を測定したときの、前記樹脂分の重量平均分子量をX、前記粘度指数(MI)をY(g/10min)とすると、これらが下式(1)を満たす、

の形態について詳しく説明する。

【ポリエステル樹脂組成物】本発明にかかるポリエステル樹脂組成物(以下、本発明の樹脂組成物と称することがある。)は、脂肪族ポリエステルを必須とする樹脂分を含む樹脂組成物であり、該樹脂分は脂肪族ポリエステルのみであっても他の樹脂を含む場合であってもよい。また、本発明の樹脂組成物には、樹脂分以外に他の成分を含むものとする。

【0009】上記脂肪族ポリエステルは、上述のように、本発明にかかるポリエステル樹脂組成物中の樹脂分における必須成分である。上記脂肪族ポリエステルは、その重量平均分子量は、100,000～500,000が好ましく、より好ましくは120,000～400,000、さらにより好ましくは140,000～300,000である。上記重量平均分子量が、100,000未満の場合は、本発明の樹脂組成物から得られる成形体が脆くなったり強度不十分になったりするおそれがあり、500,000を超える場合は、本発明の樹脂組成物の流動性が低くなり過ぎて成形が困難となるおそれがある。

【0010】上記脂肪族ポリエステルとしては、特に限定はされないが、具体的には、①多塩基酸（あるいはそのエステル）とグリコールとを縮重合して得られる重合体、②ヒドロキシカルボン酸（あるいはそのエステル）を縮重合して得られる重合体、③環状酸無水物と環状エーテルとを開環重合して得られる重合体、④環状エステルを開環重合して得られる重合体、などを好ましく挙げる事ができる。①において、多塩基酸（あるいはそのエステル）としては、特に限定はされないが、例えば、炭素数2以上の脂肪族ジカルボン酸（あるいはそのエステル）、好ましくは炭素数2～6の脂肪族ジカルボン酸（あるいはそのエステル）であることが好ましく、コハク酸、アジピン酸、スベリン酸、セバシン酸、アゼライン酸、デカンジカルボン酸、オクタデカンジカルボン酸、ダイマー酸、あるいはそれらのエステル等が挙げられるが、なかでも、炭素数2～6の脂肪族ジカルボン酸（あるいはそのエステル）がより好ましく、コハク酸、アジピン酸などが挙げられる。同様に、①において、グリコールとしては、特に限定はされないが、例えば、炭素数2以上の脂肪族グリコール、好ましくは炭素数2～6の脂肪族グリコールであることが好ましく、エチレングリコール、プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、デカメチレングリコールなどが挙げられるが、なかでも、炭素数2～4の脂肪族グリコールがより好ましく、エチレングリコール、プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオールなどが挙げられる。また、グリコール成分の一部として、ポリオキシアルキレングリコールを用いることもでき、具体的には、特に限定されるわけではないが、例えば、ポリオキシエチレングリコール、ポリオキシプロピレングリコール、ポリオキシテトラメチレングリコールおよびこれらの共重合体を挙げる事ができる。上記多塩基酸およびグリコールについては、得られる脂肪族ポリエステルの融点、生分解性、経済性を考慮すると、コハク酸とエチレングリコールとの組み合わせ、および／または、コハク酸と1,4-ブタンジオールとの組み合

わせが好ましく、なかでも、前者のコハク酸とエチレングリコールとの組み合わせがより好ましい。すなわち、本発明でいう脂肪族ポリエステルとしては、コハク酸とエチレングリコールとを重合してなる樹脂、および／または、コハク酸と1,4-ブタンジオールとを重合してなる樹脂が好ましく、なかでも、前者の樹脂、つまり、ポリエチレンサクシネートであることがより好ましい。

【0011】上記①の脂肪族ポリエステルを得る場合、反応温度は、160～250℃とすることが好ましく、170～240℃がより好ましい。160℃未満の場合、反応が進まず目的の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがあり、250℃を超える場合は、熱変性物などのゲル状分が多くなり、本発明の効果が得られないおそれがある。また、反応時間については、特に限定されるわけではなく、上記反応温度に応じ、適宜設定すればよい。②においては、ヒドロキシカルボン酸としては、限定はされないが、例えば、グリコール酸、乳酸、3-ヒドロキシプロピオン酸、3-ヒドロキシ-2,2-ジメチルプロピオン酸、3-ヒドロキシ-3-メチル酪酸、3-ヒドロキシ酪酸、4-ヒドロキシ酪酸、3-ヒドロキシ吉草酸、4-ヒドロキシ吉草酸、5-ヒドロキシ吉草酸、6-ヒドロキシカプロン酸、クエン酸、リンゴ酸およびこれらのエステル等が挙げられる。重縮合反応としては、通常のエステル交換法またはエステル化法さらには両方の併用によっても何らさしつかえない。

【0012】上記②の脂肪族ポリエステルを得る場合、反応温度は、160～250℃とすることが好ましく、170～240℃がより好ましい。160℃未満の場合、反応が進まず目的の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがあり、250℃を超える場合は、熱変性物などのゲル状分が多くなり、本発明の効果が得られないおそれがある。また、反応時間については、特に限定されるわけではなく、上記反応温度に応じ、適宜設定すればよい。③においては、環状酸無水物としては、特に限定はされないが、例えば、無水コハク酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水グルタル酸、無水アジピン酸、無水シトラコン酸等が挙げられる。同様に、環状エーテルとしては、特に限定はされないが、例えば、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、シクロヘキセンオキシド、スチレンオキシド、エピクロロヒドリン、アリルグリシジルエーテル、フェニルグリシジルエーテル、テトラヒドロフラン、オキセパン、1,3-ジオキソフラン等が挙げられる。これらのうち、得られるポリエステルの融点、生分解性、経済性を考慮すると、無水コハク酸とエチレンオキシドとの組み合わせが好ましい。すなわち、本発明でいう脂肪族ポリエステルとしては、無水コハク酸とエチレンオキシドとを重合してなる樹脂、つまり、ポリエチレンサクシネートが好ましい。開環重合は、オクチル酸ジルコニール、テトラアルコキシジルコニウム、トリアルコキシアルミニウム化合物等の金属

アルコキシド化合物等の通常公知の開環重合触媒を用い、ベンゼン、トルエン、キシレン、シクロヘキサン、*n*-ヘキサン、ジオキサン、クロロホルム、ジクロロエタン等の不活性溶媒中での重合や塊状重合等の方法により行うことができる。

【0013】上記③の脂肪族ポリエステルを得る場合、反応温度は、120～180℃とすることが好ましく、125～150℃がより好ましい。120℃未満の場合、反応が進まず目的の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがあり、180℃を超える場合は、熱変性物などのゲル状成分が多くなり、本発明の効果が得られないおそれがある。また、反応時間については、1～20時間とすることが好ましく、より好ましくは3～15時間である。1時間未満の場合、共重合性がくずれ、目的の脂肪族ポリエステル成分が得られないおそれがあり、20時間を超える場合、熱変性物などのゲル状成分が多くなり、本発明の効果が得られないおそれがある。

【0014】④においては、環状エステルとしては、特に限定はされないが、例えば、β-プロピオラクトン、β-メチルβ-プロピオラクトン、δ-バレロラクトン、ε-カプロラクトン、グリコリド、ラクチド等が挙げられる。開環重合は、③の場合と同様に、通常公知の開環重合触媒を用い、上記不活性溶媒中での重合や塊状重合等の方法により行うことができる。上記④の脂肪族ポリエステルを得る場合、反応温度は、120～180℃とすることが好ましく、125～150℃がより好ましい。120℃未満の場合、反応が進まず目的の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがあり、180℃を超える場合は、熱変性物などのゲル成分が多くなり、本発明の効果が得られないおそれがある。

【0015】また、反応時間については、1～20時間とすることが好ましく、より好ましくは3～15時間である。1時間未満の場合、発熱により反応が困難となるおそれがあり、20時間を超える場合、熱変性物などのゲル状成分が多くなり、本発明の効果が得られないおそれがある。上記脂肪族ポリエステルとしては、上述した①から④の脂肪族ポリエステルのなかでも、比較的短時間で且つ工業的に効率良く製造できるため、前記③の環状酸無水物と環状エーテルとを開環重合して得られる脂肪族ポリエステルが好ましく、また、多塩基酸部位とグリコール部位が完全に共重合できるため、前記①の多塩基酸（あるいはそのエステル）とグリコールを重縮合して得られる脂肪族ポリエステルが好ましい。

【0016】上記①から④までのいずれの脂肪族ポリエステルにおいても、その重量平均分子量が100,000より低い場合は、さらにエステル交換反応で高分子量化したものであってもよいし、種々の鎖延長剤と反応させて高分子量化したものであってもよい。上記エステル交換は、温度を180～280℃の範囲で反応させることが好ましい。180℃未満であると反応が進行せず、

280℃を超える場合は分解反応が促進される。また、その際、減圧度は0.5～3.0mmHgの範囲にして反応させることが好ましい。0.5mmHg未満であると反応するのが困難であり、3.0mmHgを超える場合は反応が進行しない。

【0017】上記鎖延長剤としては、特に限定はされないが、例えば、イソシアナート化合物、エポキシ化合物、アジリジン化合物、オキサゾリン化合物、多価金属化合物、リン酸エステル、亜リン酸エステル等、多価カルボン酸、多価酸無水物が挙げられ、これらは1種のみで用いても、2種以上を併用してもよい。上記多価カルボン酸としては、特に限定されるわけではないが、具体的には、例えば、ブタン-1, 2, 3, 4-テトラカルボン酸、ピロメリット酸、ビフェニルテトラカルボン酸、*p*-ターフェニル3, 4, 3', 4'-テトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸、1, 2, 3, 4-シクロペンタンテトラカルボン酸、ナフタレン-1, 4, 5, 8-テトラカルボン酸、3, 4, 9, 10-ペリレンテトラカルボン酸、2, 3, 4, 5-テトラヒドロフランテトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ジフェニルスルホンテトラカルボン酸、ビシクロ[2.2.2]オクト-7-エン-2, 3, 5, 6-テトラカルボン酸等や、マレイン酸-スチレン共重合体、マレイン酸-酢酸ビニル共重合体、マレイン酸-塩化ビニル共重合体、マレイン酸-ブタジエン共重合体、マレイン酸-メチルビニルエーテル共重合体、マレイン酸-エチレン共重合体等が挙げられる。これらは1種のみ用いても2種以上を併用してもよい。なかでも、ピロメリット酸は、芳香環を有しており機械的強度に優れたものとなるためより好ましい。

【0018】上記多価酸無水物としては、分子内に2つ以上の酸無水物基を有するものであれば特に限定はないが、具体的には、例えば、ブタン-1, 2, 3, 4-テトラカルボン酸二酸無水物、二無水ピロメリット酸、ビフェニルテトラカルボン酸二酸無水物、*p*-ターフェニル3, 4, 3', 4'-テトラカルボン酸二酸無水物、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二酸無水物、1, 2, 3, 4-シクロペンタンテトラカルボン酸二酸無水物、ナフタレン-1, 4, 5, 8-テトラカルボン酸二酸無水物、3, 4, 9, 10-ペリレンテトラカルボン酸二酸無水物、2, 3, 4, 5-テトラヒドロフランテトラカルボン酸二酸無水物、3, 3', 4, 4'-ジフェニルスルホンテトラカルボン酸二無水物、ビシクロ[2.2.2]オクト-7-エン-2, 3, 5, 6-テトラカルボン酸二酸無水物等の2価酸無水物；無水マレイン酸-スチレン共重合体、無水マレイン酸-酢酸ビニル共重合体、無水マレイン酸-塩化ビニル共重合体、無水マレイン酸-ブタジエン共重合体、無水マレイン酸-メチルビニルエーテル共重合体、無水マレイン酸-エチレン共重合体等が挙げられる。これらは

1種のみ用いても2種以上を併用してもよい。なかでも、二無水ピロメリット酸、ブタン-1, 2, 3, 4-テトラカルボン酸二酸無水物、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二酸無水物から選ばれる少なくとも1種であると、反応性および製造効率が高いためさらに好ましい。

【0019】上記鎖延長剤と脂肪酸ポリエステルとの反応においては、脂肪酸ポリエステルを合成した後に鎖延長剤を添加して脂肪酸ポリエステルと鎖延長剤とを反応させてもよいし、鎖延長剤の存在下で脂肪酸ポリエステルの合成しながら脂肪酸ポリエステルと鎖延長剤とを反応させてもよいし、脂肪酸ポリエステルの合成途中で鎖延長剤を添加（一括添加および／または逐次添加（連続的添加および／または間歇的添加））して脂肪酸ポリエステルと鎖延長剤と反応させてもよく、両者の反応のさせ方については、特にこれらに限定はされない。この反応方法としては、具体的には、例えば、脂肪酸ポリエステルの適当な溶媒に溶かして鎖延長剤と反応させる方法、脂肪酸ポリエステルの加熱溶融させて鎖延長剤と反応させる方法等が挙げられるが、特にこれらに限定はされない。

【0020】上記鎖延長剤の使用量は、脂肪酸ポリエステルに対して0.001～10重量%であれば特に限定はされず、好ましくは0.01～5重量%である。0.001重量%未満であると所望の効果は得られにくく、10重量%を超えるとゲル状分を含むため成形性が悪くなる。上記脂肪酸ポリエステルは、本発明でいう樹脂分中のすべて（すなわち含有割合100重量%）であっても、他の樹脂などの存在を前提とした一部であってもよく、特に限定はされないが、例えば、後者である場合は、樹脂分中に脂肪酸ポリエステルは5～95重量%含まれていることが好ましく、より好ましくは10～90重量%、さらにより好ましくは20～80重量%である。上記脂肪酸ポリエステルの含有割合が5重量%未満であると、脂肪酸ポリエステルの含有効果が十分発揮されないおそれがあり、95重量%を超えると、上記他の樹脂の効果が発揮されないおそれがあり、また、脂肪酸ポリエステルの含有効果は含有率100重量%の場合と同様である。

【0021】本発明でいう樹脂分が、上記脂肪酸ポリエステル以外に他の樹脂を含む場合、該他の樹脂としては、特に限定されるわけではないが、具体的には、例えば、ポリスチレン、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリウレタン、ポリエステル、ポリビニルアルコール系樹脂、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン樹脂、フッ素樹脂、エポキシ樹脂、アルキッド樹脂、シリコン樹脂、酢酸ビニル樹脂、ポリエステル変性アクリル樹脂、オルガノシリケートの縮合物、ポリエーテルなどが好ましく挙げられ、これらは、1種のみ含んでいても、2種以上含んでいてもよい。なかでも、相溶性に優れるとい

う理由で、ポリエステル、ポリエーテルがより好ましい。

【0022】上記他の樹脂が本発明でいう樹脂分中に含まれる場合は、該樹脂分中に、5～95重量%含まれていることが好ましく、より好ましくは10～90重量%、さらにより好ましくは20～80重量%である。上記他の樹脂の含有割合が5重量%未満であると、上記他の樹脂の含有効果が発揮されないおそれがあり、95重量%を超えると、上記樹脂分の必須成分である脂肪酸ポリエステル樹脂の含有効果が十分発揮されないおそれがあり、また、上記他の樹脂の含有効果は含有率100重量%の場合と同様である。上記他の樹脂が本発明でいう樹脂分中に含まれる場合は、該樹脂分中での脂肪酸ポリエステルを含む各種樹脂の存在形態は、特に限定されるわけではなく、複数の樹脂の単なる混合であってもよいし、新たに架橋剤を加えられ複数の樹脂がブロック状にされていてもよいし、また、各種ポリエステル樹脂が存在する場合はエステル交換などを行ってもよいが、なかでも、簡便という理由から、単なる混合された形態が好ましい。

【0023】本発明でいう脂肪酸ポリエステルの必須に含む樹脂分は、本発明にかかるポリエステル樹脂組成物中に、80重量%以上含まれていることが好ましく、より好ましくは90重量%以上、さらにより好ましくは95重量%以上である。上記樹脂分の含有割合が80重量%未満である場合、ポリエステル樹脂組成物の機械的強度を損なうおそれがある。本発明にかかる樹脂組成物は、上記樹脂分以外にも他の成分を含むものである。上記他の成分としては、特に限定はされないが、例えば、酸化防止剤、結晶核剤、顔料、骨材、充填剤、染料、耐熱剤、レベリング剤、添加系の紫外線吸収剤、添加系の紫外線安定剤、耐候剤、滑剤、帯電防止剤、安定剤、強化材、難燃剤等が挙げられる。これらを1種のみ含んでいても、2種以上含んでいてもよい。

【0024】上記酸化防止剤としては、特に限定されないが、具体的には、例えば、フェノール系酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤、リン系酸化防止剤等が挙げられ、公知の化合物の中から次のようなものが挙げられる。フェノール系酸化防止剤としては、特に限定はされないが、具体的には、例えば、2, 4-ビス-(*n*-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3, 5-*t*-ブチルアニリノ)-1, 3, 5-トリアジン、ペンタエリスリチル-テトラキス〔3-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート〕(商品名 I R G A N O X 1010)、2, 2'-チオ-ジエチレンビス〔3-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート〕、3, 9-ビス-(2-(3-(3-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)-プロピオニルオキシ)-1, 1-ジメチルエチル) 2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ〔5, 5〕

ウンデカン(商品名 Sumilizer GA-80)、
 トリエチレングリコール-ビス〔3-(3-*t*-ブチル-
 5-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネ-
 ート〕(商品名 IRGANOX 245)、1, 6-ヘキサ
 ジオール-ビス〔3-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-
 ヒドロキシフェニル)プロピオネート〕(商品名 I
 RGANOX 259)、テトラキス〔メチレン(3,
 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシヒドロシナメ-
 ート)〕メタン、オクタデシル-3-(3, 5-ジ-*t*-
 ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート(商
 品名 IRGANOX 1076)、3, 5-ジ-*t*-ブ
 チル-4-ヒドロキシ-ベンジルフォスフォネート-ジ
 エチルエステル(商品名 IRGANOX 1222)、
 N, N'-ヘキサメチレン-ビス(3, 5-ジ-*t*-ブ
 チル-4-ヒドロキシ-ヒドロシナムアミド)、3,
 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-ベンジルフォス
 フォネート-ジエチルエステル、1, 3, 5-トリメチ
 ル-2, 4, 6-トリス-(3, 5-ジ-*t*-ブチル
 -4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、ビス(3, 5-
t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ホスホン酸エチ
 ルカルシウム(商品名 IRGANOX 1425W
 L)、トリス-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロ
 キシベンジル)-イソシアヌレート(商品名 IRGA
 NOX 3114)、1, 1, 3-トリス(2-メチル
 -4-ヒドロキシ-5-*t*-ブチルフェニル)ブタン、
 2, 2-ビス〔4-(2-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-
 4-ヒドロキシヒドロシナムイルオキシ))エトキ
 シフェニル〕プロパン、2, 6-ジ-*t*-ブチル-4-
 メチルフェノールなどが挙げられる。

【0025】イオウ系酸化防止剤としては、特に限定は
 されないが、具体的には、例えば、ジラウリル-3, 3-
 チオジプロピオネート(商品名 SUMILIZER
 TPL-R)、ジミリスチル-3, 3-チオジプロピオ
 ネート(商品名 SUMILIZER TPM)、ジステ
 アリル-3, 3-チオジプロピオネート(商品名 SUM
 ILIZER TPS)、ペンタエリスリチルトetraキ
 ス(3-ラウリルチオジプロピオネート(商品名 SU
 MILIZER TP-D)、ジトリデシル-3, 3-
 チオジプロピオネート(商品名 SUMILIZER T
 L)、2-メルカプトベンゾイミダゾール(商品名 S
 UMILIZER MB)などが挙げられる。

【0026】リン系酸化防止剤としては、特に限定はさ
 れないが、具体的には、例えば、トリフェニルフォスフ
 ァイト、トリラウリルフォスファイト、トリス(ノニル
 フェニル)ホスファイト、トリイソオクチルホスファイト、
 トリイソデシルホスファイト、トリフェニルホスフ
 ァイト、ジフェニルイソデシルホスファイト、ジフェニ
 ルイソオクチルホスファイト、フェニルイソデシルホス
 ファイト、ジイソオクチルフェニルホスファイト、テト
 ラキス(2, 4-ジ-*t*-ブチルフェニル)-4, 4-

ビフェニレンフォスフォナイト(商品名 IRGAFO
 S P-EPQFF)、トリス(2, 4-ジ-*t*-ブチル
 フェニル)ホスファイト(商品名 IRGAFO S 16
 8)、ジステアリルペンタエリスリトール-ジ-ホスファ
 イト、ジオクチルペンタエリスリトール-ジ-ホスファイト、
 ジイソデシルペンタエリスリトール-ジ-ホスファイト、
 ビス(2, 4-ジ-*t*-ブチルフェニル)ペンタエ
 リスリトール-ジ-ホスファイト、ビス(2, 6-ジ-*t*-
 ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトール
 -ジ-ホスファイト(商品名 アデカスタブ PEP-3
 6)、テトラキス(2, 4-ジ-*t*-ブチルフェニル)
 -4, 4'-ビフェニレンフォスフォナイト(商品名 S
 ANDOSTAB P-EPQ)などの次亜リン酸、亜リ
 ン酸およびそのエステル類；リン酸ジフェニル、リン酸
 2-エチルヘキシルジフェニル、リン酸ジベンジル、リ
 ン酸トリエチル、リン酸トリメチル、リン酸トリオクチ
 ル、リン酸トリクレジル、リン酸トリス(4-*t*-
 ブチルフェニル)、リン酸トリス(ブトキシエチル)、
 リン酸トリ-*n*-ブチルなどのリン酸およびそのエス
 テル類；次亜リン酸、ポリリン酸などが挙げられる。

【0027】上記酸化防止剤は、単独で用いても、2種
 以上を併用してもよい。上記酸化防止剤を用いる場合
 は、本発明のポリエステル樹脂組成物中の樹脂分100
 重量部に対して、0.01~2.00重量部含むように
 することが好ましく、より好ましくは0.05~1.0
 0重量部である。上記含有量が、0.01重量部未満の
 場合は、脂肪族ポリエステルを含む樹脂分を熱安定化さ
 せる効果が十分発揮されないおそれがあり、2.00重
 量部を超える場合は、上記安定化の効果は得られるが、
 含有量に比例した効果は得られず且つ機械的強度などの
 物性が低下するおそれがある。

【0028】上記結晶核剤としては、特に限定されない
 が、以下のような公知の化合物を挙げることができ、具
 体的には、例えば、カーボンブラック、炭酸カルシウ
 ム、合成ケイ酸及びケイ酸塩、亜鉛華、ハイサイトクレ
 ー、カオリン、塩基性炭酸マグネシウム、マイカ、タル
 ク、石英粉、ケイ藻土、ドロマイト粉、酸化チタン、酸
 化亜鉛、酸化アンチモン、硫酸バリウム、硫酸カルシウ
 ム、アルミナ、ケイ酸カルシウム、窒化ホウ素等の、無
 機化合物；オクチル酸、トルイル酸、ヘプタン酸、ペラ
 ルゴン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルチミン酸、
 ステアリン酸、ベヘニン酸、セロチン酸、モンタン酸、
 メリシン酸、安息香酸、*p*-*tert*-ブチル安息香
 酸、テレフタル酸、テレフタル酸モノメチルエステル、
 イソフタル酸、イソフタル酸モノメチルエステル等の金
 属塩等の、カルボキシル基の金属塩を有する低分子有機
 化合物；ポリエチレンの酸化によって得られるカルボキ
 シル基含有ポリエチレン、ポリプロピレンの酸化によっ
 て得られるカルボキシル基含有ポリプロピレン、エチレ
 ン、プロピレン、ブテン-1等のオレフィン類とアクリ

ル酸又はメタクリル酸との共重合体、スチレンとアクリル酸又はメタクリル酸との共重合体、オレフィン類と無水マレイン酸との共重合体、スチレンと無水マレイン酸との共重合体等の、カルボキシル基を有する高分子有機化合物またはその金属塩；3，3-ジメチルブテン-1，3-メチルブテン-1，3-メチルペンテン-1，3-メチルヘキセン-1，3，5，5-トリメチルヘキセン-1などの炭素数5以上の3位分岐 α -オレフィン、ならびにビニルシクロペンタン、ビニルシクロヘキササン、ビニルノルボルナンなどのビニルシクロアルカンの重合体、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコールなどのポリアルキレングリコール、ポリグリコール酸、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリトランスシクロヘキサジメタノールテレフタレート、セルロース、セルロースエステル、セルロースエーテル等の、高分子有機化合物；リン酸ジフェニル、亜リン酸ジフェニル、リン酸ビス(4-tert-ブチルフェニル)ナトリウム、リン酸メチレン(2，4-tert-ブチルフェニル)ナトリウム等の、リン酸又は亜リン酸及びその金属塩；ビス(p-メチルベンジリデン)ソルビトール、ビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトール等の、ソルビトール誘導体；無水チオグリコール酸、パラトルエンスルホン酸およびその金属塩；等を挙げることができる。これらの中でも、結晶化速度、生分解性の点から、主鎖に芳香環をもつ高分子化合物以外の化合物が好ましい。また、成形のためにはよりいっそう速い結晶化速度が求められるため、これら結晶核剤の中でも、無機化合物、カルボキシル基を有する低分子有機化合物及びその金属塩物、無機化合物とカルボキシル基を有する低分子有機化合物及びその金属塩との組み合わせ、カルボキシル基を有する高分子有機化合物またはその金属塩、カルボキシル基を有する高分子有機化合物またはその金属塩とカルボキシル基を有する低分子有機化合物及びその金属塩との組み合わせ、が好ましい。また、さらに、無機化合物の中では、タルク、マイカ、窒化ホウ素が好ましく、カルボキシル基を有する低分子有機化合物及びその金属塩物の中では、ステアリン酸が好ましい。

【0029】上記結晶核剤は、単独で用いても、2種以上を併用してもよい。上記結晶核剤を用いる場合は、本発明のポリエステル樹脂組成物中の樹脂分100重量部に対して、0.0001~10重量部含むようにすることが好ましく、より好ましくは0.0001~5重量部、さらにより好ましくは0.5~5重量部である。上記含有量が、0.0001重量部未満の場合は、結晶核剤としての所定の効果が得られにくく、10重量部を超える場合は、配合に見合うだけの効果が得られにくく、不経済であって現実的ではない。上記顔料としては、その種類は特に限定されるわけではないが、具体的には、無機顔料としては酸化チタン、三酸化アンチモン、亜鉛

華、リトボン、鉛白等の白色顔料、カーボンブラック、黄鉛、モリブデン赤、ベンガラ等の着色顔料など、また、有機顔料としてはベンジジン、ハンザイエローなどのアゾ化合物やフタロシアニンブルーなどのフタロシアニン類などを好ましく挙げることができ、これらは単独で用いても、2種以上を併用してもよい。

【0030】本発明のポリエステル樹脂組成物を耐候性の必要な環境で用いる場合は、上記顔料としては耐候性の良好なものを選択することが望ましく、例えば、白色顔料である酸化チタンに関してはアナタース型の酸化チタンを用いるよりもルチル型の酸化チタンを用いる方が塗膜の耐候性の面で好ましい。また、ルチル型としては、硫酸法酸化チタンよりは塩素法酸化チタンのほうが長期に耐候性を維持発現させることができるので好ましい。上記骨材としては、その種類は透明骨材でも着色骨材であってもよく、具体的には、特に限定されるわけではないが、透明骨材としては長石、硅砂、硅石、寒水砂、ガラスビーズ、合成樹脂ビーズなど、また、着色骨材としては大理石粉、御影石粉、蛇紋岩、螢石、着色硅砂粉、有色陶磁器粉などを好ましく挙げることができ、これらは単独で用いても、2種以上を併用してもよい。

【0031】本発明でいう重量平均分子量 \bar{M}_w とは、本発明にかかるポリエステル樹脂組成物中の樹脂分についての重量平均分子量であり、かつ、該樹脂組成物の粘度指数(MI)の測定時における樹脂分の重量平均分子量である。なお、本発明においては、上記粘度指数(MI)の測定時とは、粘度指数(MI)の測定後であるとしてよい。よって、MI測定直後(MI測定装置から押し出された直後)の流動性のあるポリエステル樹脂組成物について、その樹脂組成物に含まれる樹脂分の重量平均分子量を以下の方法により測定する。また、上記樹脂分の重量平均分子量 \bar{M}_w の測定方法は、特に限定されるわけではないが、一般的には、例えば、GPC(ゲルパーミエーションクロマトグラフィー)を用いて測定する方法が好ましく挙げられ、具体的には、クロロホルム等の溶媒により、本発明のポリエステル樹脂組成物中の樹脂分のみを溶出して溶離液とし測定する。上記GPCとしては、特に限定はされないが、具体的には、例えば、カラムとしてShodex K-805、804、803および802(昭和電工(株)製)を備えたHLC-8020(東ソー(株)製)などを挙げることができる。また、測定条件としては、上記溶離液を、40℃、1ml/分でカラムに通して測定する条件が挙げられる。

【0032】一方、上記樹脂分が脂肪族ポリエステル以外の他の樹脂を含む場合についても、上述の測定方法と同様の方法により樹脂分の重量平均分子量 \bar{M}_w を求めることができるが、この際求める重量平均分子量 \bar{M}_w は、上記樹脂分に対し測定し算出した重量平均分子量であり、つまり、上記樹脂分に含まれる各樹脂それぞれの重量平均分子量が平均された値であるとする。本発明でいう粘度

指数Yとは、通常一般的に樹脂等の流動性の指標として考えられているメルトインデックス(MI)を、本発明にかかるポリエステル樹脂組成物について測定した値のことである。このMIの測定方法としては、具体的には、JIS K7210に基づく測定方法が挙げられる。

【0033】本発明でいうポリエステル樹脂組成物は、前記式(1)を満たす樹脂組成物であるため、樹脂分が高い重量平均分子量であるとともに樹脂組成物全体で高い流動性を有するといった、両方の特性を兼ね備え、成形性に優れている。よって、押出し成形、射出成形、中空成形および真空成形等のための成形材料として用いる場合には、エネルギーコストの低減や生産性の向上を達成した状態で、各種部品、容器、器具、フィルム、シートおよび繊維等の成形品を得ることができる。

〔脂肪族ポリエステル〕本発明にかかる脂肪族ポリエステル(以下、本発明の脂肪族ポリエステルと称することがある。)は、環状酸無水物と環状エーテルとを開環重合して得られる重合体と、多価酸無水物と、を反応させて得られる。

【0034】上記環状酸無水物としては、特に限定はされないが、具体的には、例えば、上記本発明のポリエステル樹脂組成物の説明において記載した環状酸無水物の具体例と同様のものを好ましく挙げることができる。上記環状エーテルとしては、特に限定はされないが、具体的には、例えば、上記本発明のポリエステル樹脂組成物の説明において記載した環状エーテルの具体例と同様のものを好ましく挙げることができる。上記重合体を得る場合には、環状酸無水物および環状エーテル以外にも、他の単量体を使用してよく、その種類は特に限定はされないが、具体的には、例えば、上記本発明のポリエステル樹脂組成物の説明において記載した多塩基酸(あるいは、そのエステル)、グリコール、ヒドロキシカルボン酸(あるいは、そのエステル)、環状エステルなどを好ましく挙げることができる。

【0035】上記多価酸無水物としては、特に限定はされないが、具体的には、例えば、上記本発明のポリエステル樹脂組成物の説明において記載した多価酸無水物の具体例と同様のものを好ましく挙げることができる。本発明においては、多価酸無水物は、鎖延長剤として、複数の上記重合体(環状酸無水物と環状エーテルとを開環重合して得られる重合体)と反応し結合することによって、上記重合体どうし間に介在する構造となり、上記重合体を高分子量化させ得る。具体的には、上記重合体の分子量が100、000未満であっても、容易に高分子量化させることができる。

【0036】本発明の脂肪族ポリエステルを得る方法としては、上述のように、上記環状酸無水物と環状エーテルとを開環重合して得られる重合体を、多価酸無水物と反応させる方法が好ましい。上記開環重合は、オクチル

酸ジルコニール、テトラアルコキシジルコニウム、トリアルコシアルミニウム化合物等の金属アルコキシド化合物等の通常公知の開環重合触媒を用い、ベンゼン、トルエン、キシレン、シクロヘキサン、n-ヘキサン、ジオキサン、クロロホルム、ジクロロエタン等の不活性溶媒中での重合や塊状重合等の方法により行うことができる。

【0037】上記開環重合においては、反応温度は120~180℃とすることが好ましく、125~150℃がより好ましい。120℃未満の場合、反応が進まず所望の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがあり、180℃を超える場合は、熱変性物などのゲル状成分が多くなり、所望の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがある。また、反応時間は1~20時間とすることが好ましく、より好ましくは3~15時間である。1時間未満の場合、共重合性がくずれ、所望の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがあり、20時間を超える場合、熱変性物などのゲル状成分が多くなり、同様に所望の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがある。

【0038】このようにして得られる上記重合体と上記多価酸無水物との反応においては、上記重合体を合成した後に上記多価酸無水物を添加して両者を反応させてもよいし、多価酸無水物の存在下で上記重合体を合成しながら両者を反応させてもよいし、上記重合体の合成途中で多価酸無水物を添加(一括添加および/または逐次添加(連続的添加および/または間歇的添加))して両者を反応させてもよく、両者の反応のさせ方については、特にこれらに限定はされない。具体的な反応方法・反応手順としては、例えば、上記重合体を合成した後に上記重合体を適当な溶媒に溶かして多価酸無水物と反応させる方法、上記重合体を加熱溶融させて多価酸無水物と反応させる方法などが挙げられるが、特にこれらに限定はされない。

【0039】上記多価酸無水物の使用量は、上記重合体に対して0.001~10重量%であれば特に限定はされず、好ましくは0.01~5重量%である。0.001重量%未満であると所望の効果は得られにくく、10重量%を超えるとゲル状分を含むため成形性が悪くなる。また、多価酸無水物の存在下で上記重合体の合成する場合や、上記重合体の合成途中に多価酸無水物を添加して使用する場合は、重合体の合成に用いる単量体の全重量に対して、0.001~10重量%であれば特に限定はされず、好ましくは0.01~5重量%である。0.001重量%未満であると所望の効果が得られないおそれがあり、10重量%を超えるとゲル状分を含むため成形性が悪くなるおそれがある。

【0040】上記重合体と上記多価酸無水物との反応においては、反応温度は、120~180℃であることが好ましく、より好ましくは125~150℃である。反応温度が120℃未満の場合、反応が進まず所望の脂

肪族ポリエステルが得られないおそれがあり、180℃を超える場合は、熱変性物などのゲル状分が多くなり所望の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがある。上記重合体と上記多価酸無水物との反応においては、反応時間は、1～20時間であることが好ましく、より好ましくは3～15時間である。反応時間が1時間未満の場合は、共重合性がくずれ所望の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがあり、20時間を超える場合は、熱変性物などのゲル状分が多くなり所望の脂肪族ポリエステルが得られないおそれがある。

【0041】上記重合体と上記多価酸無水物との反応においては、反応圧力は、特に限定されるわけではなく、適宜所望の脂肪族ポリエステルが得られるよう設定すればよい。上記重合体と上記多価酸無水物との反応においては、上記各反応条件下での反応後、得られた重合体を熟成させることが好ましいが、その場合、熟成温度、熟成時間は、特に限定されるわけではなく、適宜所望の脂肪族ポリエステルが得られるよう設定すればよい。本発明の脂肪族ポリエステルについては、その重量平均分子量は、1,000～500,000であることが好ましく、より好ましくは100,000～400,000である。重量平均分子量が、1,000未満であると本発明の脂肪族ポリエステルの効果が得られないおそれがあり、500,000を超える場合は、本発明の脂肪族ポリエステルの流動性が低くなりすぎて成形が困難となるおそれがある。

【0042】本発明の脂肪族ポリエステルについては、その分子量分布は、1.5～10であることが好ましく、より好ましくは2～5である。分子量分布が、1.5未満であると、多価酸無水物の効果が小さいと考えられ、10を超える場合は、多価酸無水物の影響が大きくゲル状分を含んでいると考えられる。本発明の脂肪族ポリエステルについては、メルトインデックス(MI)の値は、0.1～100であることが好ましく、より好ましくは1～50である。MI値が0.1未満であると、いかなる成形においても粘度が高すぎて困難となるおそれがあり、100を超える場合は、粘度が低すぎて成形には適さないおそれがある。

【0043】本発明の脂肪族ポリエステルは、特性として重量平均分子量の高さとともに優れた流動性を兼ね備え、特に成型加工性に優れている。よって、本発明の脂肪族ポリエステルの用途については、特に限定されるわけではないが、具体的には、例えば、上述した本発明のポリエステル樹脂組成物に含まれる脂肪族ポリエステルとしても好適に用いることができるが、その他にも、可塑剤、潤滑剤、粘着剤などにも好ましく用いることができ、本発明の脂肪族ポリエステルの優れた効果十分に発揮することができる。

【0044】

【実施例】以下に実施例によりさらに詳細に本発明を説

明するが、本発明はこれに限定されるものではない。なお、以下においては、便宜上、「重量部」を単に「部」と記すことがある。また、便宜上、「重量%」を単に「%」と記すことがある。本発明の実施例、比較例における測定、評価法を説明する。

〔重量平均分子量〕GPC（ゲルパーミエーションクロマトグラフィー）により測定する。GPC測定は、カラムとしてShodex K-805、804、803および802（昭和電工（株）製）を直列に備えたHLC-8020（東ソー（株）製）を用い、測定条件としては、クロロホルムによる溶離液を、40℃、1ml/分でカラムに通して測定した。

【0045】なお、本発明の実施例、比較例においては、「MI測定後の重量平均分子量」とは、MI測定直後（MI測定装置から押出された直後）に樹脂（または、樹脂組成物）をクロロホルムに溶かして1%溶液とした状態で測定した重量平均分子量であり、すなわち、これをMI測定時の樹脂（または、樹脂組成物）の重量平均分子量であるとする。

〔メルトインデックス(MI)〕JIS K7210に準拠する。JIS K7210に基づくメルトインデックス(MI)の測定方法は、2160gの荷重をピストン上加えたときに、190℃の樹脂組成物の溶融体が、特定のオリフィスを通して10分間に押し出される重量(g)を測定する方法である。よって、MIの単位は「g/10min」となり、MIの値が小さいほど、流動性が低いことを意味する。

【0046】—実施例1—

1リットルのSUS製反応器に、無水コハク酸110部、オクチル酸ジルコニール1.67部、ピロメリット酸無水物0.23部および脱水トルエン220部を加え、窒素置換を行った。次いで、攪拌下でSUS反応器を徐々に130℃まで昇温して無水コハク酸を溶解し、同温度でSUS製反応器の圧力を0.29～0.69MPa（ゲージ圧）に維持しながら、酸化エチレン70.9部を1時間あたり14.0部の添加速度で5時間にわたって連続的に投入した。

【0047】酸化エチレン投入後、130℃で1.0時間熟成反応を行い、実施例1の脂肪族ポリエステルを得た。この脂肪族ポリエステルの、GPC測定による重量平均分子量は285,000、分子量分布は4.0、メルトインデックス(MI)は85であった。また、GPC測定によるMI測定後の重量平均分子量は115,000であった。

—実施例2—

ピロメリット酸無水物を0.34部とする以外は、実施例1と同様の操作を行い、実施例2の脂肪族ポリエステルを得た。この脂肪族ポリエステルのGPC測定による重量平均分子量は356,000、分子量分布は5.0、メルトインデックス(MI)は90であった。ま

た、GPC測定によるMI測定後の重量平均分子量は、170,000であった。

【0048】—実施例3—

1リットルのSUS製反応器に、無水コハク酸110部、オクチル酸ジルコニール1.67部、ピロメリット酸無水物0.23部および脱水トルエン220部を加え、窒素置換を行った。次いで、攪拌下でSUS反応器を徐々に130℃まで昇温して無水コハク酸を溶解し、同温度でSUS製反応器の圧力を0.29~0.69MPa（ゲージ圧）に維持しながら、酸化エチレン70.9部を1時間あたり14.0部の添加速度で5時間にわたって連続的に投入した。

【0049】酸化エチレン投入後、130℃で1.0時間熟成反応を行い、脂肪酸ポリエステル（1）を得た。脂肪酸ポリエステル（1）のGPC測定による重量平均分子量は、285,000であった。得られた脂肪酸ポリエステル（1）30部、イルガノックス1010（チバガイギー社製酸化防止剤の商品名）0.15部およびステアリン酸リチウム0.15部を、ラボプラストミル（東洋精機社製小型二軸混練装置の製品名）を用いて、30rpm、ヒーター温度130℃の条件下で混合し、成形材料用ポリエステル樹脂組成物（1）を得た。

【0050】次に、得られた成形材料用ポリエステル樹脂組成物（1）について、80℃で10時間減圧下で乾燥後、JIS K7210に基づくMI（メルトインデックス）測定を行った。その結果、MIは45で、GPC測定によるMI測定後の樹脂分の重量平均分子量は150,000であった。ここで、 $X=150,000$ 、 $Y=45$ としたところ、成形材料用ポリエステル樹脂組成物（1）は、前記式（1）を満たすものであった。

—実施例4—

ピロメリット酸無水物を0.34部とする以外は、実施例3と同様にして、脂肪酸ポリエステル（2）を得た。脂肪酸ポリエステル（2）のGPC測定による重量平均分子量は、356,000であった。

【0051】得られた脂肪酸ポリエステル（2）30部、実施例1でも用いたイルガノックス0.15部およびステアリン酸リチウム0.15部を、ラボプラストミルを用いて、30rpm、ヒーター温度130℃の条件下で混合し、成形材料用ポリエステル樹脂組成物（2）を得た。次に、得られた成形材料用ポリエステル樹脂組成物（2）について、80℃で10時間減圧下で乾燥後、JIS K7210に基づくMI（メルトインデックス）測定を行った。その結果、MIは39で、GPC測定によるMI測定後の樹脂分の重量平均分子量は210,000であった。

【0052】ここで、 $X=210,000$ 、 $Y=39$ としたところ、成形材料用ポリエステル樹脂組成物（2）は、前記式（1）を満たすものであった。

—比較例1—

1リットルのガラス製反応器に、コハク酸519部および1,4-ブタンジオール417部を加え、窒素置換を行った。次いで、窒素ブローのもと攪拌下にガラス製反応器を徐々にヒーター温度170℃まで昇温し、3時間後に水が留分として135部得られた。引き続いて1時間かけて減圧を行い、0.8~6mmHgの減圧下、ヒーター温度170℃で2.5時間反応を行った。さらにヒーター温度210℃で5時間反応を行った結果、脂肪酸ポリエステル（11）を得た。脂肪酸ポリエステル（11）のGPC測定による重量平均分子量は、12,600であった。

【0053】得られた脂肪酸ポリエステル（11）100部に、チタントetraイソプロポキシド0.016部を加え、0.3~1.0mmHgの減圧下、ヒーター温度220℃で5.25時間、引き続いて240℃で2.5時間反応を行った。反応後、さらに、100mLのガラス製反応容器に移し、ヘキサメチレンジイソシアネート0.12部を加え、窒素ブローのもと攪拌下、180℃で2時間反応させて、脂肪酸ポリエステル（11'）を得た。得られた脂肪酸ポリエステル（11'）30部、実施例1でも用いたイルガノックス0.15部およびステアリン酸リチウム0.15部を、ラボプラストミルを用いて、30rpm、ヒーター温度130℃の条件下で混合し、成形材料用ポリエステル樹脂組成物（11）を得た。

【0054】得られた成形材料用ポリエステル樹脂組成物（11）について、80℃で10時間減圧下で乾燥後、JIS K7210に基づくMI（メルトインデックス）測定を行った。MIは2で、GPC測定によるMI測定後の樹脂分の重量平均分子量は180,000であった。ここで、 $X=180,000$ 、 $Y=2$ としたところ、成形材料用ポリエステル樹脂組成物（11）は、前記式（1）を満たさないものであった。

—実施例5—

成形材料用ポリエステル樹脂組成物（2）9部と、成形材料用ポリエステル樹脂組成物（11）21部とを、ラボプラストミルを用いて、30rpm、ヒーター温度130℃の条件下で混合し、成形材料用ポリエステル樹脂組成物（3）を得た。この成形材料用ポリエステル樹脂組成物（3）では、その樹脂分が、脂肪酸ポリエステル（1）と脂肪酸ポリエステル（11）とをブレンドしたものとなる。

【0055】次に、得られた成形材料用ポリエステル樹脂組成物（3）について、80℃で10時間減圧下で乾燥後、JIS K7210に基づくMI（メルトインデックス）測定を行った。その結果、MIは8で、GPC測定によるMI測定後の樹脂分の重量平均分子量は186,000であった。ここで、 $X=186,000$ 、 $Y=8$ としたところ、成形材料用ポリエステル樹脂組成物（3）は、前記式（1）を満たすものであった。

【0056】

【表1】

	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 1
MI 測定時の 重量平均分子量	150,000	210,000	186,000	180,000
MI (g/10min)	45	39	8	2
引っ張り強度 (MPa)	32	38	42	48
成形性	○	○	○	×

フロントページの続き

(72)発明者 城島 理浩
大阪府吹田市西御旅町5番8号 株式会社
日本触媒内

【0057】

【発明の効果】本発明によれば、生分解性の脂肪族ポリエステルを用いた組成物における、重量平均分子量の確保と流動性の確保の両立を可能とし、その結果、機械的強度に優れるとともに成形性も良好であるという利点を合わせ持つポリエステル樹脂組成物、および、該樹脂組成物に好適に用いることのできる脂肪族ポリエステルを提供することができる。

F ターム(参考) 4J002 BB032 BB122 BC032 BD122
BE022 BF022 BN152 CD002
CF002 CF012 CF031 CF181
CF191 CH002 CK022 CP032
FD070 FD090 FD200 GT00
4J029 AA01 AA02 AA03 AB01 AB07
AD01 AD10 AE01 BA03 BA04
BA05 BA08 BA09 BA10 CA02
CA04 CA06 EA02 EA03 EA05
EG02 EG03 EG05 EG09 EH02
EH03 FC14 GA13 GA17 HA01
HA05 HB01 HB07 HE06 JB131
JB163 JB171 JC153 JC223
JC293 JC483 JC583 JF221
JF331 KD02 KD07 KE02
KE03 LA01